# (19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

# 特開平11-176572

(43)公開日 平成11年(1999)7月2日

(51) Int.Cl.6 識別記号 FΙ H 0 5 B 33/14 H 0 5 B 33/14 В C09K 11/06 C09K 11/06  $\boldsymbol{z}$ 

> 審査請求 有 請求項の数6 OL (全23頁)

(71)出願人 000004237 (21)出願番号 特願平9-337260 日本電気株式会社 (22)出願日 平成9年(1997)12月8日 東京都港区芝五丁目7番1号 (72)発明者 鈴木 敏泰 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株 式会社内 (72)発明者 田中 泰三 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株 式会社内 (72) 発明者 東口 達 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株 式会社内 (74)代理人 弁理士 若林 忠 (外4名) 最終頁に続く

## (54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセント素子

#### (57)【要約】

【課題】 高輝度で、色純度が高い赤色発光有機EL素 子を提供する。

【解決手段】 有機EL素子の発光層の構成材料とし て、一般式(1)(式中、R1~R6はそれぞれ独立に水 素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは 無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは 無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル 基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若し くは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香 族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、 置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置 換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキ シカルボニル基、カルボキシル基を表す。) で示される 5-シアノピロメテン-BF₂錯体と通常の発光材料と を混合して用いる。

【化1】

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 陰極と、陽極と、これらの陰極と陽極と の間に発光層を含む少なくとも一層の有機薄膜層とを有 する有機エレクトロルミネッセント素子において、前記 有機薄膜層の少なくとも一層が、一般式(1):

1

【化1】

(式中、 $R^1$  ~ $R^6$  は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基を表す。 $R^1$  ~ $R^6$  は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で示される5ーシアノピロメテンー $BF_2$  錯体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセント素子。

【請求項2】 前記発光層が、前記一般式(1)で示される5-シアノピロメテン-BF2 錯体と、一般式(2):

(4).

【化2】

$$Ar^{1}$$
 $N-Ar^{3}$ 
 $Ar^{2}$ 
(2)

(式中、 $Ar^1 \sim Ar^3$  は、それぞれ独立に置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。 $Ar^1 \sim Ar^3$  が持つ置換基は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で表される芳香族アミン化合物との混合物を含んで構成されることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記発光層が、前記一般式(1)で示される5-シアノピロメテン-BF2 錯体と、一般式

(3): 【化3】

$$A_{r}^{1}$$
  $A_{r}^{3}$  (3)  $A_{r}^{2}$   $A_{r}^{4}$ 

(式中、 $Ar^1 \sim Ar^4$  は、それぞれ独立に置換若しく くは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシェは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳 50 ロアルキル基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素

香族複素環基を表す。Yは置換若しくは無置換のアリーレン基を表す。A  $r^4$  が持つ置換基は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で表される芳香族ジアミン化合物との混合物を含んで構成されることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 前記発光層が、前記一般式(1)で示される5-シアノピロメテン-BF2 錯体と、一般式(4):

10 【化4】

$$Ar_{N}^{1} Ar^{2}$$
 $Ar_{N}^{6} \dot{Z}_{N}^{1} Ar^{3}$ 
 $Ar_{N}^{5} \dot{A}r^{4}$ 
(4)

(式中、 $Ar^1 \sim Ar^6$  は、それぞれ独立に置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。Zは3価の置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、または置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。 $Ar^1 \sim Ar^6$  が持つ置換基は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で表される芳香族トリアミン化合物との混合物により構成されることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 前記発光層が、前記一般式(1)で示される5-シアノピロメテン-BF2 錯体と、一般式(5):

【化5】

30

(式中、R<sup>7</sup> ~R<sup>12</sup> は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルカキル基、置換若しくは無置換のデ香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基を表す。R<sup>7</sup> ~R<sup>12</sup>が持つ置換基は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。L<sup>1</sup> は置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素

基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しく は無置換のアラルキル基を表す。 nは1乃至3の範囲の 任意の整数であり、mはO乃至2の範囲の任意の整数で ある。Mは(n+m)価の金属イオンを表す。)で表さ れるオキシム金属錯体化合物との混合物を含んで構成さ れることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロル\*

3

\* ミネッセンス素子。 【請求項6】 前記発光層が、前記一般式(1)で示さ れる5-シアノピロメテン-BF2 錯体と、一般式 (6):【化6】

20

(式中、R13~R24は、それぞれ独立に水素原子、ハロ ゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミ ノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアル キル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若し くは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の アルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素 基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しく は無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリー ルオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニ ル基、カルボキシル基を表す。R13~R24が持つ置換基 は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよ い。L<sup>2</sup> は置換若しくは無置換のアルキレン基、置換若 しくは無置換のアルケニレン基、置換若しくは無置換の シクロアルキレン基、置換若しくは無置換のアリーレン 基、置換若しくは無置換のアラルキレン基を表す。1は O又は1の整数である。sは1又は2の整数である。M は(s+1)価の金属イオンを表す。)で表されるオキ シム金属錯体化合物との混合物を含んで構成されること を特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセ ンス素子。

#### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、平面光源や表示素 子に利用される赤色発光有機エレクトロルミネッセント 素子(以下、有機エレクトロルミネッセント素子を単に 「有機EL素子」と呼ぶ)に関するものである。

#### [0002]

【従来の技術】エレクトロルミネッセント素子は、自発 光型の平面型表示素子としての用途が有望視されてい る。エレクトロルミネッセント素子の中でも有機物質を 用いた有機EL素子は、無機EL素子とは異なり、交流 駆動かつ高電圧が必要といった制約がなく、また、有機 化合物の多様性により、多色化が容易であると考えられ ることから、フルカラーディスプレーなどへの応用が期 待され、盛んに開発が行われている。

【0003】有機EL素子をフルカラーディスプレーに 適用する場合、3原色である赤色、緑色、青色の3色の※50

※発光を得る必要がある。緑色発光は非常に多くの例が報 告されており、例えば、緑色素子としては、8-キノリ ノールのアルミニウム錯体を用いた素子 (アプライド・ フィジックス・レターズ (Applied Physics Letter s)、51巻、913頁、1987年参照)、ジアリー ルアミン誘導体を用いた素子(特開平8-53397号 公報参照) などが報告されている。

【0004】青色発光素子も、スチルベン系化合物を用 いた素子(特開平5-295359号公報参照)、トリ アリールアミン誘導体を用いた素子(特開平7-539 55号公報参照)、テトラアリールジアミン誘導体を用 いた素子(特開平8-48656号公報参照)、スチリ ル化ビフェニル化合物を用いた素子(特開平6-132 080号公報参照)など、数多くの報告例がある。

#### [0005]

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、赤色発 光の得られる有機EL素子については、特開平3-15 2897号公報では、青色発光を蛍光色素層において波 長変換することにより赤色発光を得ており、特開平7-166159号公報や、特開平7-272854号公 報、特開平7-288184号公報、特開平8-286 033号公報では、緑色や青色の発光が得られる発光層 に赤色蛍光色素をドーピングすることにより赤色発光を 得ているが、いずれも輝度、色純度の面で十分とは言え ない。

【0006】また、特開平9-208946号公報で 40 は、ピロメテン-BF2 錯体を発光層に用いた有機EL 素子を開示しているが、ホスト分子の青緑色発光を伴う ため白色光発光となり、結果的に赤色発光は得られてい ない。また、ここで使われているピロメテン-BF2 錯 体は5位にシアノ基を含まないため、長波長シフトが十 分でなく、単体では黄色-オレンジ色発光となる。

【0007】以上のように、赤色発光が得られる有機E L素子は、現在まで、実用上十分な性能を持ったものが 得られていない。

【0008】そこで本発明は、この点に鑑みてなされた ものであり、発光輝度が大きく、色純度、使用時の安定

性に優れた赤色発光有機EL素子を提供することを目的 とするものである。

#### [0009]

【課題を解決するための手段】本発明者らは、発光輝度が大きく、色純度、使用時の安定性に優れた赤色発光有機EL素子の構成を見い出すべく実験及び研究を重ねた結果、特定の5ーシアノピロメテンーBF2 錯体を有機EL素子に用いることにより、これらの要件を満たした赤色発光有機EL素子が得られることを見出し、本発明に至った。

【0010】また、前記5-シアノピロメテン-BF2 錯体を、特定の芳香族炭化水素あるいは芳香族複素環を 置換基にもつ芳香族アミン化合物、芳香族ジアミン化合 物または芳香族トリアミン化合物と混合して用いた場合 に、特に優れた特性を有する赤色発光有機EL素子が得 られることを見い出し、本発明に至った。

【0011】また、前記5-シアノピロメテン-BF2 錯体を特定のオキシム金属錯体材料と混合して用いた場合に、特に優れた特性を有する赤色発光有機EL素子が 得られることを見出し、本発明に至った。

【0012】第1の発明は、陰極と、陽極と、これらの 陰極と陽極との間に発光層を含む少なくとも一層の有機 薄膜層とを有する有機エレクトロルミネッセント素子に おいて、前記有機薄膜層の少なくとも一層が、一般式 (1):

[0013]

【化7】

$$R^{2} \xrightarrow{N_{\bar{B}}} N^{+} \xrightarrow{R^{5}} R^{5}$$
 (1)

(式中、 $R^1$  ~ $R^6$  は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニルオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基を表す。 $R^1$  ~ $R^6$  は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で示される5ーシアノピロメテンー $BF_2$  錯体を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセント素子に関する。

【 0 0 1 4 】 第 2 の発明は、前記発光層が、前記一般式 (1) で示される 5 ーシアノピロメテンー B F 2 錯体 と、一般式 (2):

[0015] [化8] Ar<sup>1</sup> N-Ar<sup>3</sup> (2)

(式中、Ar<sup>1</sup> ~Ar<sup>3</sup> は、それぞれ独立に置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。Ar<sup>1</sup> ~Ar<sup>3</sup> が持つ置換基は、10 それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で表される芳香族アミン化合物との混合物を含んで構成されることを特徴とする第1の発明の有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

6

【0016】第3の発明は、前記発光層が、前記一般式 (1)で示される5-シアノピロメテン-BF2 錯体 と、一般式(3):

[0017]

【化9】

20

$$\begin{array}{ccc}
Ar^{1} & Ar^{3} \\
N-Y-N & (3) \\
Ar^{2} & Ar^{4}
\end{array}$$

(式中、Ar¹~Ar⁴は、それぞれ独立に置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。Yは置換若しくは無置換のアリーレン基を表す。Ar¹~Ar⁴が持つ置換基は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で表される芳香族ジアミン化合物との混合物を含んで構成されることを特徴とする第1の発明の有機エレクトロルミ30ネッセンス素子に関する。

【0018】第4の発明は、前記発光層が、前記一般式 (1)で示される5-シアノピロメテン- $BF_2$  錯体 と、一般式 (4):

[0019]

【化10】

$$Ar_{N}^{1} Ar^{2}$$
 $Ar_{N}^{6} Z_{N}^{1} Ar^{3}$ 
 $Ar_{Ar}^{5} Ar^{4}$ 
(4)

(式中、Ar¹~Ar⁶は、それぞれ独立に置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。Zは3価の置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、または置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。Ar¹~Ar⁶が持つ置換基は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。)で表される芳香族トリアミン化合物との混合物により構成されることを特徴とする第1の発明の有機エレクトロル50ミネッセンス素子に関する。

(5)

8

【 0 0 2 0 】 第 5 の 発明は、前記発光層が、前記一般式 (1) で示される 5 ーシアノピロメテンー B F 2 錯体 と、一般式 (5):

7

[0021]

【化11】

(式中、R<sup>7</sup> ~R<sup>12</sup> は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素\*20

\*基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基を表す。R<sup>7</sup> ~R<sup>12</sup>が持つ置換基は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよい。L<sup>1</sup> は置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基を表す。nは1乃至3の範囲の任意の整数であり、mは0乃至2の範囲の任意の整数である。Mは(n+m)価の金属イオンを表す。)で表されるオキシム金属錯体化合物との混合物を含んで構成されることを特徴とする第1の発明の有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【 0 0 2 2 】 第 6 の発明は、前記発光層が、前記一般式 (1) で示される 5 - シアノピロメテン - B F 2 錯体 と、一般式 (6):

[0023]

【化12】

(式中、 $R^{13} \sim R^{24}$ は、それぞれ独立に水素原子、ハロ ゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミ ノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアル キル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若し くは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の アルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素 基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しく は無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリー ルオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニ ル基、カルボキシル基を表す。R13~R24が持つ置換基 は、それらのうちの任意の2つで環を形成していてもよ い。L<sup>2</sup> は置換若しくは無置換のアルキレン基、置換若 しくは無置換のアルケニレン基、置換若しくは無置換の シクロアルキレン基、置換若しくは無置換のアリーレン 基、置換若しくは無置換のアラルキレン基を表す。1は ○又は1の整数である。sは1又は2の整数である。M は(s+1)価の金属イオンを表す。)で表されるオキ シム金属錯体化合物との混合物を含んで構成されること を特徴とする第1の発明の有機エレクトロルミネッセン ス素子に関する。

[0024]

【発明の実施の形態】本発明に係る有機EL素子に用いられる5-シアノピロメテン-BF2 錯体は、一般式 ※50

※(1)で表される構造を有する化合物である。一般式

(1)において、R<sup>1</sup> ~R<sup>6</sup> は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、二内型、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基を表す。

【0025】本発明に係る有機EL素子に用いられる芳 香族アミン化合物、芳香族ジアミン化合物、芳香族トリ アミン化合物は、それぞれ一般式(2)、(3)、

(4)で表される構造を有する化合物である。

【0026】一般式(2)、(3)、(4)において、Ar<sup>1</sup> ~Ar<sup>6</sup> は、それぞれ独立に置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。Yは、置換若しくは無置換のアリーレン基を表し、Zは、3価の置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、または置換若しくは無置換の芳香族複素環基を表す。

【0027】本発明に係る有機EL素子に用いられるオ

キシム金属錯体材料は、一般式(5)及び(6)で表さ れる構造を有する化合物である。

【0028】一般式(5)及び(6)において、R<sup>7</sup> ~ R24は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒド ロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ 基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換 若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換の シクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ 基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若し くは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のア 10 ラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、 置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボ キシル基を表す。L1 は、置換若しくは無置換のアルキ ル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しく は無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換の芳 香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環 基、置換若しくは無置換のアラルキル基を表す。L<sup>2</sup> は、置換若しくは無置換のアルキレン基、置換若しくは 無置換のアルケニレン基、置換若しくは無置換のシクロ アルキレン基、置換若しくは無置換の2価の芳香族炭化 水素基、置換若しくは無置換の2価の芳香族複素環基、 置換若しくは無置換のアラルキレン基を表す。nは1~ 3の整数であり、mは0~2で表される整数である。1 は0又は1の整数である。sは1又は2の整数である。 Mは、一般式(5)において(n+m)価の金属イオ ン、一般式(6)において(s+1)価の金属イオンを 表す。

【0029】上記一般式中のハロゲン原子としては、フ ッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

【0030】置換若しくは無置換のアミノ基は-NX1  $X^2$  と表され、 $X^1$  、 $X^2$  としてはそれぞれ独立に、水 素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピ ル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t ーブチル基、nーペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘ プチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒ ドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル 基、1、3-ジヒドロキシイソプロピル基、2、3-ジ ヒドロキシーセーブチル基、1,2,3-トリヒドロキ シプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、 2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2 - ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル 基、2、3-ジクロローセーブチル基、1、2、3-ト リクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチ ル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、 1,2-ジブロモエチル基、1,3-ジブロモイソプロ ピル基、2,3-ジブロモt-ブチル基、1,2,3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエ チル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル 基、1,2-ジヨードエチル基、1,3-ジヨードイソ 50 ソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリ

プロピル基、2,3-ジョードセーブチル基、1,2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミ ノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチ ル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイ ソプロピル基、2,3-ジアミノセーブチル基、1, 2,3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソ ブチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシア ノイソプロピル基、2,3-ジシアノt-ブチル基、 1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、 1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロ イソブチル基、1,2-ジニトロエチル基、1,3-ジ ニトロイソプロピル基、2,3-ジニトロセーブチル 基、1,2,3-トリニトロプロピル基、フェニル基、 1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、 2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナント リル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル 基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1 ーナフタセニル基、2ーナフタセニル基、9ーナフタセ ニル基、4-スチリルフェニル基、1-ピレニル基、2 - ピレニル基、4 - ピレニル基、2 - ビフェニルイル 基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p - ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェ ニルー4ーイル基、mーターフェニルー3ーイル基、m - ターフェニルー2-イル基、o - トリル基、m - トリ ル基、pートリル基、pーtーブチルフェニル基、pー (2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2 ーナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチ 30 ルー1-アントリル基、4'ーメチルビフェニルイル 基、4''-t-ブチルーp-ターフェニルー4-イル 基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、 2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル 基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インド リル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-イ ンドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリ ル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、 6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フ リル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベ ンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフ ラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル 基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニ ル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラ ニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフ ラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノ リル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリ ル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソ キノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル 基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イ

(7)

1 1 ニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、 2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバ ゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンス リジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナン スリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナ ンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェ ナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニ ル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナン 10 スロリン-3-イル基、1,7-フェナンスロリン-4 - イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基、 1,7-フェナンスロリン-6-イル基、1,7-フェ ナンスロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン -9-イル基、1,7-フェナンスロリン-10-イル 基、1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロ リン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イ ル基、1,8-フェナンスロリン-6-イル基、1,8 -フェナンスロリン-7-イル基、1,8-フェナンス ロリン-9-イル基、1,8-フェナンスロリン-10 - イル基、1,9-フェナンスロリン-2-イル基、 1,9-フェナンスロリン-3-イル基、1,9-フェ ナンスロリン-4-イル基、1,9-フェナンスロリン -5-イル基、1,9-フェナンスロリン-6-イル 基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナンスロリンー8ーイル基、1、9ーフェナンスロ リン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2 -イル基、1,10-フェナンスロリン-3-イル基、 1,10-フェナンスロリン-4-イル基、1,10-フェナンスロリンー5ーイル基、2、9ーフェナンスロ リン-1-イル基、2,9-フェナンスロリン-3-イ ル基、2,9-フェナンスロリン-4-イル基、2,9 -フェナンスロリン-5-イル基、2,9-フェナンス ロリン-6-イル基、2,9-フェナンスロリン-7-イル基、2,9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2,8-フェナ ンスロリン-1-イル基、2,8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェナンスロリン-4-イル基、 2,8-フェナンスロリン-5-イル基、2,8-フェ ナンスロリンー6-イル基、2,8-フェナンスロリン -7-イル基、2,8-フェナンスロリン-9-イル 基、2、8-フェナンスロリン-10-イル基、2、7 -フェナンスロリン-1-イル基、2,7-フェナンス ロリン-3-イル基、2,7-フェナンスロリン-4-イル基、2,7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2,7-フェナン スロリン-8-イル基、2,7-フェナンスロリン-9 - イル基、2,7-フェナンスロリン-10-イル基、

チアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチ アジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサ ジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジ ニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル 基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オ キサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラ ザニル基、2ーチエニル基、3ーチエニル基、2ーメチ ルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イ ル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピ ロールー5ーイル基、3ーメチルピロールー1ーイル 基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロ ールー4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、 2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェ ニルプロピル) ピロールー1-イル基、2-メチルー1 -インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチルー3ーインドリル基、4ーメチルー3ーインドリ ル基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチ ル1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル 基、4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。 【0031】置換若しくは無置換のアルキル基として は、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル 基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、nーペンチル基、nーヘキシル基、nーヘプ チル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒ ドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒド ロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、 1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒド ロキシー t ーブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプ ロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジ クロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、 2,3-ジクロローt-ブチル基、1,2,3-トリク ロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル 基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、 1,2-ジブロモエチル基、1,3-ジブロモイソプロ ピル基、2,3-ジブロモセーブチル基、1,2,3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエ チル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル 基、1、2-ジヨードエチル基、1、3-ジヨードイソ プロピル基、2,3-ジョードセーブチル基、1,2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミ ノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチ ル基、1,2-ジアミノエチル基、1,3-ジアミノイ ソプロピル基、2,3-ジアミノセーブチル基、1, 2,3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソ ブチル基、1,2-ジシアノエチル基、1,3-ジシア ノイソプロピル基、2,3-ジシアノt-ブチル基、 1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、 1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノ 50 1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロ

イソブチル基、1,2-ジニトロエチル基、1,3-ジ ニトロイソプロピル基、2,3-ジニトロセーブチル 基、1、2、3-トリニトロプロピル基等が挙げられ る。

【0032】置換若しくは無置換のアルケニル基として は、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニ ル基、3-ブテニル基、1、3-ブタンジエニル基、1 ーメチルビニル基、スチリル基、2,2ージフェニルビ ニル基、1,2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリ ル基、1,1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル 基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3 -フェニルアリル基、3,3-ジフェニルアリル基、 1,2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニ ル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。 【0033】置換若しくは無置換のシクロアルキル基と しては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペ ンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシ ル基等が挙げられる。

【0034】置換若しくは無置換のアルコキシ基は、一 OY<sup>1</sup> で表される基であり、Y<sup>1</sup> としては、メチル基、 エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル 基、sーブチル基、イソブチル基、tーブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オ クチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル 基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチ ル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒド ロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシーt-ブ チル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロ ロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル 基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル 基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3-ジクロ ローtーブチル基、1,2,3-トリクロロプロピル 基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモ エチル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモ エチル基、1,3-ジブロモイソプロピル基、2,3-ジブロモセーブチル基、1,2,3-トリブロモプロピ ル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨー ドエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジョー ドエチル基、1,3-ジョードイソプロピル基、2,3 -ジョードセーブチル基、1,2,3-トリョードプロ ピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-ア ミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジア ミノエチル基、1、3-ジアミノイソプロピル基、2、 3-ジアミノセーブチル基、1,2,3-トリアミノプ ロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1,2-ジ シアノエチル基、1、3-ジシアノイソプロピル基、 2,3-ジシアノt-ブチル基、1,2,3-トリシア ノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、

14

ージニトロエチル基、1,3-ジニトロイソプロピル 基、2,3-ジニトロセーブチル基、1,2,3-トリ ニトロプロピル基等が挙げられる。

【0035】置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基の 例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチ ル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アン トリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル 基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9 - フェナントリル基、1 - ナフタセニル基、2 - ナフタ 10 セニル基、9ーナフタセニル基、1ーピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、 3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-タ ーフェニルー4ーイル基、p-ターフェニルー3ーイル 基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル -4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-タ ーフェニルー2-イル基、o-トリル基、m-トリル 基、pートリル基、pーtーブチルフェニル基、pー (2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2 ーナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチ 20 ルー1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル 基、4''-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基 等が挙げられる。

【0036】置換若しくは無置換の芳香族複素環基とし ては、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル 基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル 基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インド リル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-イ ンドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1 -イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソ インドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインド リル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル 基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル 基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5 -ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベン ゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベ ンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソ ベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イ ソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル 基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル 基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリ ル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリ ル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5 -キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カル バゾリル基、2ーカルバゾリル基、3ーカルバゾリル 基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フ ェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6 -フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、 **2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1,2 50 8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル** 

基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル 基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-ア クリジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フェナン スロリン-2-イル基、1、7-フェナンスロリン-3 ーイル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、 1,7-フェナンスロリン-5-イル基、1,7-フェ ナンスロリンー6-イル基、1,7-フェナンスロリン -8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9-イル 基、1,7-フェナンスロリン-10-イル基、1,8 ーフェナンスロリンー2-イル基、1,8ーフェナンス 10 ンドリル基、4ーメチルー1-インドリル基、2ーメチ ロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1,8-フェナン スロリン-7-イル基、1,8-フェナンスロリン-9 -イル基、1,8-フェナンスロリン-10-イル基、 1,9-フェナンスロリン-2-イル基、1,9-フェ ナンスロリン-3-イル基、1,9-フェナンスロリン -4-イル基、1,9-フェナンスロリン-5-イル 基、1,9-フェナンスロリン-6-イル基、1,9-フェナンスロリン-7-イル基、1,9-フェナンスロ リン-8-イル基、1、9-フェナンスロリン-10-イル基、1,10-フェナンスロリン-2-イル基、 1,10-フェナンスロリン-3-イル基、1,10-フェナンスロリンー4ーイル基、1、10ーフェナンス ロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-1-イル基、2、9-フェナンスロリン-3-イル基、2、 9-フェナンスロリン-4-イル基、2,9-フェナン スロリン-5-イル基、2,9-フェナンスロリン-6 -イル基、2,9-フェナンスロリン-7-イル基、 2,9-フェナンスロリン-8-イル基、2,9-フェ ナンスロリン-10-イル基、2,8-フェナンスロリ ン-1-イル基、2,8-フェナンスロリン-3-イル 基、2,8-フェナンスロリン-4-イル基、2,8-フェナンスロリン-5-イル基、2,8-フェナンスロ リンー6-イル基、2、8-フェナンスロリン-7-イ ル基、2,8-フェナンスロリン-9-イル基、2,8 -フェナンスロリン-10-イル基、2,7-フェナン スロリン-1-イル基、2,7-フェナンスロリン-3 - イル基、2,7-フェナンスロリン-4-イル基、 2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェ ナンスロリン-6-イル基、2,7-フェナンスロリン -8-イル基、2,7-フェナンスロリン-9-イル 基、2、7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フ ェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジ ニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニ ル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニ ル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル 基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル 基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、

ジアゾリル基、5ーオキサジアゾリル基、3ーフラザニ ル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピ ロールー1-イル基、2-メチルピロールー3-イル 基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロ ールー5ーイル基、3ーメチルピロールー1ーイル基、 3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール -4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2tーブチルピロールー4ーイル基、3-(2-フェニル プロピル) ピロールー1-イル基、2-メチル-1-イ ルー3ーインドリル基、4ーメチルー3ーインドリル 基、2-t-ブチル1-インドリル基、4-t-ブチル 1-インドリル基、2-t-ブチル3-インドリル基、 4-t-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。 【0037】置換若しくは無置換のアラルキル基として は、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニル エチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニル イソプロピル基、フェニルーtーブチル基、αーナフチ ルメチル基、 $1-\alpha-$ ナフチルエチル基、 $2-\alpha-$ ナフ チルエチル基、1-α-ナフチルイソプロピル基、2- $\alpha$  ーナフチルイソプロピル基、 $\beta$  ーナフチルメチル基、  $1-\beta-$ ナフチルエチル基、 $2-\beta-$ ナフチルエチル 基、 $1-\beta$ ーナフチルイソプロピル基、 $2-\beta$ ーナフチ ルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル) エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチ ルベンジル基、oーメチルベンジル基、pークロロベン ジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル 基、 p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、 oーブロモベンジル基、 pーヨードベンジル基、mー 30 ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロ キシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒド ロキシベンジル基、 p-アミノベンジル基、m-アミ ノベンジル基、o-アミノベンジル基、 p-ニトロベ ンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル 基、 p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、 o - シアノベンジル基、1 - ヒドロキシ-2 - フェニル イソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピ

【0038】置換若しくは無置換のアリールオキシ基 は、 $-OZ^1$  と表され、 $Z^1$  としては、フェニル基、1ーナフチル基、2ーナフチル基、1ーアントリル基、2 -アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリ ル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、 4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナ フタセニル基、2ーナフタセニル基、9ーナフタセニル 基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル 基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4 ービフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、 p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2 4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサ 50 -イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフ

ル基等が挙げられる。

ェニルー3ーイル基、mーターフェニルー2ーイル基、 o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェ ニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1 ーナフチル基、4ーメチルー1ーアントリル基、4'ー メチルビフェニルイル基、4''-t-ブチル-p-ター フェニルー4ーイル基、2ーピロリル基、3ーピロリル 基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル 基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インド リル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-イ ンドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル 基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5 -イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソ インドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベン ゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラ ニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル 基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル 基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニ ル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラ ニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、 3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6 - キノリル基、7 - キノリル基、8 - キノリル基、1 -イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリ ル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリ ニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル 基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カ ルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリ ジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンス リジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナン スリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナ ンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フ ェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリ ジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、 9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナン スロリン-5-イル基、1,7-フェナンスロリン-6 -イル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基、 1,7-フェナンスロリン-9-イル基、1,7-フェ ナンスロリン-10-イル基、1、8-フェナンスロリ ン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル 基、1、8-フェナンスロリン-4-イル基、1、8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナンスロ リンー6-イル基、1、8-フェナンスロリン-7-イ ル基、1,8-フェナンスロリン-9-イル基、1,8 -フェナンスロリン-10-イル基、1,9-フェナン スロリン-2-イル基、1,9-フェナンスロリン-3 ーイル基、1,9-フェナンスロリン-4-イル基、

ナンスロリン-6-イル基、1,9-フェナンスロリン -7-イル基、1,9-フェナンスロリン-8-イル 基、1,9-フェナンスロリン-10-イル基、1,1 0-フェナンスロリン-2-イル基、1,10-フェナ ンスロリン-3-イル基、1,10-フェナンスロリン -4-イル基、1,10-フェナンスロリン-5-イル 基、2,9-フェナンスロリン-1-イル基、2,9-フェナンスロリンー3ーイル基、2、9ーフェナンスロ リン-4-イル基、2,9-フェナンスロリン-5-イ 10 ル基、2,9-フェナンスロリン-6-イル基、2,9 ーフェナンスロリンー7ーイル基、2,9ーフェナンス ロリン-8-イル基、2,9-フェナンスロリン-10 -イル基、2,8-フェナンスロリン-1-イル基、 2,8-フェナンスロリン-3-イル基、2,8-フェ ナンスロリン-4-イル基、2,8-フェナンスロリン -5-イル基、2,8-フェナンスロリン-6-イル 基、2、8-フェナンスロリン-7-イル基、2、8-フェナンスロリンー9ーイル基、2、8ーフェナンスロ リン-10-イル基、2,7-フェナンスロリン-1-イル基、2,7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2,7-フェナン スロリン-5-イル基、2,7-フェナンスロリン-6 -イル基、2,7-フェナンスロリン-8-イル基、 2.7-フェナンスロリン-9-イル基、2.7-フェ ナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2 -フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェ ノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノ チアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキ サジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサ ジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、 5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オ キサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル 基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル 基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロ ールー4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、 3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール -2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロールー5ーイル基、2-t-ブチルピロール -4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール -1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メ チルー1-インドリル基、2-メチルー3-インドリル 基、4-メチルー3-インドリル基、2-t-ブチル1 ーインドリル基、4-t-ブチル1-インドリル基、2 - t - ブチル3 - インドリル基、4 - t - ブチル3 - イ ンドリル基等が挙げられる。

オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチ ル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブ チル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒ ドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシーt-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、ク ロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル 基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル 基、1、3-ジクロロイソプロピル基、2、3-ジクロ ローtーブチル基、1,2,3-トリクロロプロピル 基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモ 10 ン、インドール、イソインドール、1 H-インダゾー エチル基、2-ブロモイソブチル基、1,2-ジブロモ エチル基、1,3-ジブロモイソプロピル基、2,3-ジブロモセーブチル基、1,2,3-トリブロモプロピ ル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨー ドエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジョー ドエチル基、1,3-ジョードイソプロピル基、2,3 ージヨードセーブチル基、1,2,3ートリヨードプロ ピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-ア ミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1,2-ジア ミノエチル基、1、3-ジアミノイソプロピル基、2、 3-ジアミノセーブチル基、1,2,3-トリアミノプ ロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1,2-ジ シアノエチル基、1、3-ジシアノイソプロピル基、 2,3-ジシアノt-ブチル基、1,2,3-トリシア ノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、 2-二トロエチル基、2-二トロイソブチル基、1,2 -ジニトロエチル基、1,3-ジニトロイソプロピル 基、2、3ージニトロセーブチル基、1、2、3ートリ ニトロプロピル基等が挙げられる。

【0040】置換若しくは無置換のアリーレン基として は、置換または無置換のベンゼン、ナフタレン、アント ラセン、フェナントレン、ナフタセン、ピレン、ビフェ ニル、ターフェニル等の芳香族炭化水素や縮合多環式炭 化水素、さらに、置換または無置換のカルバゾール、ピ ロール、チオフェン、フラン、イミダゾール、ピラゾー ル、イソチアゾール、イソオキサゾール、ピリジン、ピ ラジン、ピリミジン、ピリダジン、フラザン、チアンス レン、イソベンゾフラン、フェノキサジン、インドリジ ン、インドール、イソインドール、1 H - インダゾー ル、プリン、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナ フチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、 プテリジン、カルバゾール、β-カルバゾリン、フェナ ンスリジン、アクリジン、ペリミジン、フェナントロリ ン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン等の 複素環化合物あるいは縮合複素環化合物の水素原子を2 個除いた3価の基が挙げられる。

【0041】3価の置換若しくは無置換の芳香族炭化水 素基としては、置換または無置換のベンゼン、ナフタレ ン、アントラセン、フェナントレン、ナフタセン、ピレ ン、ビフェニル、ターフェニル等の芳香族炭化水素や縮 合多環式炭化水素、の水素原子を3個除いた三価の基が 挙げられる。

【0042】3価の置換若しくは無置換の芳香族複素環 基としては、置換または無置換のカルバゾール、ピロー ル、チオフェン、フラン、イミダゾール、ピラゾール、 イソチアゾール、イソオキサゾール、ピリジン、ピラジ ン、ピリミジン、ピリダジン、フラザン、チアンスレ ン、イソベンゾフラン、フェノキサジン、インドリジ ル、プリン、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナ フチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、 プテリジン、カルバゾール、β-カルバゾリン、フェナ ンスリジン、アクリジン、ペリミジン、フェナントロリ ン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン等の 複素環化合物あるいは縮合複素環化合物の水素原子を3 個除いた3価の基が挙げられる。

【0043】置換若しくは無置換のアルキレン基として は、置換または無置換のメタン、エタン、プロパン、n ーブタン、2ーメチルプロパン、nーペンタン、2ーメ 20 チルブタン、2,2-ジメチルプロパン、n-ヘキサ ン、2-メチル-n-ペンタン、3-メチル-n-ペン タン、2,2ージメチルブタン、2,3ージメチルブタ ン等のアルカンの水素原子を2個除いた2価の基があげ られる。

【0044】置換若しくは無置換のアルケニレン基とし ては、置換または無置換のエチレン、プロピレン、1-ブテン、2-ブテン、1,3-ブタジエン等のアルケン の水素原子を2個除いた2価の基が挙げられる。

【0045】置換若しくは無置換のシクロアルキレン基 30 としては、置換または無置換のシクロプロパン、シクロ ブタン、シクロペンタン、シクロヘキサン等のシクロア ルカンの水素原子を2個除いた2価の基が挙げられる。 【0046】これらの多価基が有する置換基としては、 前述したハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは 無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは 無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル 基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若し くは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香 40 族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、 置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置 換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキ シカルボニル基、カルボキシル基などが挙げられる。 【0047】環を形成する2価基の例としては、テトラ

メチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジ フェニルメタン-2,2'-ジイル基、ジフェニルエタ  $\lambda = 3, 3' - ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'$ ージイル基、1,3ーブタジエニルー1,4-エン基等 が挙げられる。

【0048】オキシム金属錯体を形成する金属として 50

は、アルミニウム、ベリリウム、ビスマス、カドミウム、セリウム、コバルト、銅、鉄、ガリウム、ゲルマニウム、水銀、インジウム、ランタン、マグネシウム、モリブデン、ニオブ、アンチモン、スカンジウム、スズ、タンタル、トリウム、チタニウム、ウラン、タングステン、ジルコニウム、バナジウム、亜鉛等が挙げられる。【0049】以下に、本発明に係る有機EL素子において用いる一般式(1)で表される化合物の例(化学式(7)~(16))を挙げるが、一般式(1)で表される化合物はこれらの例に限定されるものではない。

[0050]

【化13】

[0051]

【化14】

[0052]

【化15】

[0053]

【化16】

[0054]

【化17】

$$C_2H_5O_2C$$
  $C_2H_5$   $C_2C_2H_5$  (11)

【0055】 【化18】

[0056]

【化19】

[0057]

【化20】

20 [0058]

【化21】

$$\begin{array}{c}
CN \\
NBN
\end{array}$$
(15)

30 [0059]

【化22】

以下に、本発明に係る有機EL素子において用いる一般式(2)で表される化合物の例(化学式(17)~(24))を挙げるが、一般式(2)で表される化合物はこ40 れらの例に限定されるものではない。

[0060]

【化23】

[0061]

50 【化24】

30

24

[0062] 【化25】 (19)

[0063] 【化26】 (20)

[0064] 【化27】 (21)

[0065] 【化28】 (22)

[0066] 【化29】 (23)

[0067] 【化30】

(24)

以下に、本発明に係る有機EL素子において用いる一般 式(3)で表される化合物の例(化学式(25)~(2 10 8))を挙げるが、一般式(3)で表される化合物はこ れらの例に限定されるものではない。

[0068] 【化31】 (25)

[0069] 【化32】 (26)[0070]

【化33】 (27)

[0071] 【化34】 40 (28)

50

26

以下に、本発明に係る有機E L 素子において用いる一般 \* 【0073】 式(4)で表される化合物の例(化学式(29)、(3 【化36】 0))を挙げるが、一般式(4)で表される化合物はこの例に限定されるものではない。

[0072]

【化35】

以下に、本発明に係る有機EL素子において用いる一般 30%式(5)で表される化合物の例(化学式(31)~(3 9))を挙げるが、一般式(5)で表される化合物はこれらの例に限定されるものではない。

[0074]

【化37】

【0075】 【化38】 (32)

【0076】 40 【化39】

50 [0077]

\*

28

[0078]

【化41】

[0080]

【化43】

以下に、本発明に係る有機EL素子において用いる一般 式(6)で表される化合物の例(化学式(40)~(4 4))を挙げるが、一般式(6)で表される化合物はこ れらの例に限定されるものではない。 [0083]

[0081]

【化44】

40

[0082]

【化45】

**%**50

[0084] 【化47】

[0085]

10

[0086]

[0087]

本発明に係る有機EL素子は、陰極と陽極の間に有機薄 であり、その例として、以下の4つが挙げられる。

- (a)陽極、発光層、陰極(図1参照)
- (b)陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極 (図2参照)
- (c)陽極、発光層、電子輸送層、陰極(図3参照)
- (d)陽極、正孔輸送層、発光層、陰極(図4参照)
- 一般式(1)で表される化合物は、一般式(2)~
- (6)で表される発光材料と混合して、上記の有機EL 素子における発光層に用いられる。この際、一般式
- (1)で表される化合物に加えて他の正孔輸送材料、発 光材料、電子輸送材料を共に混合してもよい。

【0088】本発明に係る有機EL素子において用いら れる正孔輸送材料は、特に限定されず、通常、正孔輸送 材料として使用されている化合物であればいかなる化合 物でも使用することができる。例えば、下記の化学式 [I] 乃至 [VI] で表されるビス (ジ (p-トリル) ア ミノフェニル)-1,1-シクロヘキサン(化合物 [I])、N, N'ージフェニルーN, N'ービス(3

-メチルフェニル) -1, 1'-ビフェニル-4, 4'

ージアミン(化合物 [II])、N, N'ージフェニルー★50

★N-N-ビス(1-ナフチル)-(1,1'-ビフェニ 膜層を1層あるいは2層以上積層した構造を有したもの 30 ル)-4, 4'-ジアミン(化合物 [III])等や化合 物(17)~(30)のモノアミンからテトラミン類 や、スターバースト型分子(化合物 [IV] ~ [VI])等 が挙げられる。

[0089]

【化51】 [I]

[0090] 【化52】

32

本発明に係る有機E L 素子において用いられる電子輸送 材料は、特に限定されず、通常、電子輸送材として使用 されている化合物であればいかなる電子輸送材料でも使 用することができる。例えば、下記の化学式 [VII] 乃 至 [X] で表される、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジア グール(化合物 [VII])、ビス {2-(4-t-ブチ ルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール}-m-フェニレン(化合物 [VIII])、等のオキサジアゾール 誘導体、トリアゾール誘導体(化合物 [IX]、[X] 等)が挙げられる。また、化合物(31)~(44)の オキシム金属錯体も電子輸送材料として用いることが可 能である。

[0095]
[1257]
N-N
[VII]
[0096]
[1258]

[IX]

34

[0098]

有機薄膜EL素子の陽極は、正孔を正孔輸送層に注入する役割を担うものであり、4.5 e V以上の仕事関数を有することが効果的である。本発明に係る有機EL素子に用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NESA)、金、銀、白金、銅等がある。

【0099】また、陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を効果的に注入するために、仕事関数が陽極よりも小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的には、インジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウムーインジウム合金、マグネシウムーアルミニウムースカンジウムーリチウム合金、マグネシウムー銀合金等が使用できる。

【0100】本発明に係る有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンコーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いる前記一般式(1)で示される化合物と一般式(2)~(6)で示される発光材料を混合して含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)、あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャスティング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

【0101】本発明に係る有機EL素子の各有機層の膜厚は、特に制限されないが、一般に、膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなる。このため、各有機層の膜厚は1乃至数 n m から 1 μ m の範囲が好ましい。

#### [0102]

【実施例】以下、本発明を実施例を挙げて説明するが、 本発明の要旨を変更しない限り、本発明は以下の実施例 に限定されるものではない。

【0103】(合成例1): 化合物(12) N, N' - 例1と同様の手法により、N, N' - ジフルオロボリルジフルオロボリル-1, 2, 3, 7, 8, 9-ヘキサメ%50 - 1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジニトロー

※チルー5ーシアノジピリンの合成

1,2,3,7,8,9-ヘキサメチル-5-シアノジピロメテン(10mmol)のトルエン溶液(20m1)にトリエチルアミン(5m1)を加え、さらに、トリフルオロボランージエチルエーテル錯体(20mmo201)を加えた。混合物を10分間還流したのち、室温まで冷却した。これを水洗し、有機層を硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を除去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製を行い、78%の収率でN,N'ージフルオロボリル-1,2,3,7,8,9-ヘキサメチル-5-シアノジピリンを得た。

【 0 1 0 4 】 (合成例 2 ): 化合物 (7 ) N, N'ージ フルオロボリルー1, 3, 7, 9ーテトラメチルー5ー シアノジピリンの合成

1,2,3,7,8,9-ヘキサメチル-5-シアノジ 0 ピロメテンを1,3,7,9-テトラメチル-5-シア ノジピロメテンに代える他は、合成例1と同様の手法に より、N,N'-ジフルオロボリル-1,3,7,9-テトラメチル-5-シアノジピリンを得た。

【 0 1 0 5 】 (合成例 3 ): 化合物 (8) N, N'ージフルオロボリルー1, 3, 7, 9ーテトラメチルー2, 8ージフルオロー5ーシアノジピリンの合成

1,2,3,7,8,9-ヘキサメチル-5-シアノジピロメテンを1,3,7,9-テトラメチル-2,8-ジフルオロ-5-シアノジピロメテンに代える他は、合めの1と同様の手法により、N,N'-ジフルオロボリル-1,3,7,9-テトラメチル-2,8-ジフルオロー5-シアノジピリンを得た。

【 0 1 0 6 】 (合成例 4 ): 化合物 (9) N, N' ージ フルオロボリルー1, 3, 7, 9ーテトラメチルー2, 8ージニトロー5ーシアノジピリンの合成

1,2,3,7,8,9-へキサメチル-5-シアノジ ピロメテンを1,3,7,9-テトラメチル-2,8-ジニトロ-5-シアノジピロメテンに代える他は、合成 例1と同様の手法により、N,N'-ジフルオロボリル 5-シアノジピリンを得た。

【0107】(合成例5):N,N'-ジフルオロボリル-1,3,7,9-テトラメチル-2,8-ジメトキシー5-シアノジピリン(化合物(10))の合成1,2,3,7,8,9-ヘキサメチル-5-シアノジピロメテンを1,3,7,9-テトラメチル-2,8-ジメトキシー5-シアノジピロメテンに代える他は、合成例1と同様の手法により、N,N'-ジフルオロボリル-1,3,7,9-テトラメチル-2,8-ジメトキシー5-シアノジピリンを得た。

35

【0108】(合成例6): N, N' -ジフルオロボリル-1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジカルボエトキシ-5-シアノジピリン(化合物(11))の合成

1, 2, 3, 7, 8, 9-ヘキサメチル-5-シアノジピロメテンを1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジカルボエトキシ-5-シアノジピロメテンに代える他は、合成例1と同様の手法により、N, N'-ジフルオロボリル-1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジカルボエトキシ-5-シアノジピリンを得た。

【0109】(合成例7): N, N' -ジフルオロボリル-1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジシクロヘキシル-5-シアノジピリン(化合物(13))の合成

1, 2, 3, 7, 8, 9-ヘキサメチル-5-シアノジピロメテンを1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジシクロヘキシル-5-シアノジピロメテンに代える他は、合成例1と同様の手法により、N, N'-ジフルオロボリル-1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジシクロヘキシル-5-シアノジピリンを得た。

【0110】(合成例8):N, N'-ジフルオロボリル-1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジフェニル-5-シアノジピリン(化合物(14))の合成1, 2, 3, 7, 8, 9-ヘキサメチル-5-シアノジピロメテンを1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジフェニル-5-シアノジピロメテンに代える他は、合成例1と同様の手法により、N, N'-ジフルオロボリル-1, 3, 7, 9-テトラメチル-2, 8-ジフェニル-5-シアノジピリンを得た。

【0111】(合成例9): N, N' -ジフルオロボリル-1, 3, 7, 9-テトラフェニル-5-シアノジピリン(化合物(15))の合成

1,2,3,7,8,9-へキサメチル-5-シアノジピロメテンを1,3,7,9-テトラフェニル-5-シアノジピロメテンに代える他は、合成例1と同様の手法により、N,N'-ジフルオロボリル-1,3,7,9-テトラフェニル-5-シアノジピリンを得た。

【0112】(合成例10):ピロリルーインドリルーシアノメチンボロンジフルオリド(化合物(16))の合成

1,2,3,7,8,9-ヘキサメチルー5ーシアノジ ピロメテンをインドリルーシアノピロメテンに代える他 は、合成例1と同様の手法により、ピロリルーインドリ ルーシアノメチンボロンジフルオリドを得た。

36

【0113】以下、一般式(1)で示される化合物と一般式(2)~(6)で示される発光材料との混合物を発光層に用いた例(実施例1~29)、一般式(1)で示される化合物と一般式(2)~(6)で示される発光材料との混合物と、電子輸送材料とからなる混合薄膜を発光層に用いた例(実施例30~34)、一般式(1)で示される化合物と一般式(2)~(6)で示される発光材料との混合物と、正孔輸送材料とからなる混合薄膜を発光層に用いた例(実施例35~39)を示す。

【0114】(実施例1)実施例1に係る有機EL素子の断面構造を図1に示す。本実施例に係る有機EL素子は、ガラス基板1と、ガラス基板1上に形成された陽極2及び陰極6と、陽極2と陰極6との間に挟み込まれた発光層4とからなる。

【0115】以下、実施例1に係る有機薄膜EL素子の作製手順について説明する。先ず、ガラス基板1上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/□になるように製膜し、陽極2とした。その上に発光層4として、化合物(12)と化合物(17)を1:20の重量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成した。次に、陰極6としてマグネシウムー銀合金を真空蒸着法にて200nm形成し、有機EL素子を作製した。

【0116】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、60cd/m²の赤色 発光が得られた。

30 【0117】(実施例2)発光層4として、化合物(12)と化合物(24)を1:20の重量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成する以外は、実施例1と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0118】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、60 c d / m $^2$  の赤色 発光が得られた。

【 0119】(実施例3)発光層4として、化合物(13)と化合物(26)を1:20の重量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成する以外は、実施例1と同40 様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0120】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5 V印加したところ、80 c d / m $^2$  の赤色 発光が得られた。

【0121】(実施例4)発光層4として、化合物(16)と化合物(24)を1:20の重量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成する以外は、実施例1と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0122】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、70cd/m²の赤色 50 発光が得られた。

38

【0123】(実施例5)発光層4として、化合物(1 6)と化合物(28)を1:20の重量比で共蒸着して 作製した薄膜を50nm形成する以外は、実施例1と同 様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【O124】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、90cd/m²の赤色 発光が得られた。

【0125】(実施例6)発光層4として、化合物(1 6)と化合物(31)を1:20の重量比で共蒸着して 様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0126】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、70cd/m²の赤色 発光が得られた。

【0127】(実施例7)発光層4として、化合物(1 6)と化合物(33)を1:20の重量比で共蒸着して 作製した薄膜を50nm形成する以外は、実施例1と同 様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0128】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、70cd/m²の赤色 発光が得られた。

【0129】(実施例8)発光層4として、化合物(1 6)と化合物(40)を1:20の重量比で共蒸着して 作製した薄膜を50nm形成する以外は、実施例1と同 様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0130】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、60cd/m²の赤色 発光が得られた。

【0131】(実施例9)実施例9に係る有機EL素子 の断面構造は実施例1 (図1参照)に係る有機EL素子 の断面構造と同一である。以下、実施例9に係る有機薄 膜EL素子の作製手順について説明する。

【0132】ガラス基板1上にITOをスパッタリング によってシート抵抗が20Ω/□になるように製膜し、 陽極2とした。その上に化合物(7)と化合物(25) の重量比1:20の混合物のクロロホルム溶液を用いた スピンコート法により40nmの発光層4を形成した。 次に、陰極6としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法 により200nm形成し、有機EL素子を作製した。

【0133】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、40cd/m²の赤色 発光が得られた。

【0134】(実施例10)発光層4として、化合物 (8) と化合物(25) の重量比1:20の混合物のク ロロホルム溶液を用いたスピンコート法により40 nm の発光層を形成する以外は、実施例9と同様の操作を行 い、有機EL素子を作製した。

【0135】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を5V印加したところ、50cd/m²の赤色 発光が得られた。

【0136】 (実施例11) 実施例11に係る有機EL 素子の断面構造を図2に示す。本実施例に係る有機EL 素子は、ガラス基板1と、ガラス基板1上に形成された 陽極2及び陰極6と、陽極2と陰極6との間に挟み込ま れた正孔輸送層3、発光層4及び電子輸送層5とからな

【0137】以下、実施例11に係る有機薄膜EL素子 の作製手順について説明する。 先ず、ガラス基板1上に ITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/ 作製した薄膜を50mm形成する以外は、実施例1と同 10 □になるように製膜し、陽極2とした。その上に正孔輸 送層3として、N, N'ージフェニルーN, N'ービス (3-メチルフェニル) - [1, 1'-ビフェニル] -4, 4'-ジアミン(化合物 [II]) を真空蒸着法にて 50nm形成した。次に、発光層4として、化合物

> (9) と化合物(18) を1:20の重量比で共蒸着し て作製した薄膜を40 nm形成した。次に、電子輸送層 5として2-(4-ビフェニリル)-5-(4-t-ブ チルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール[0] 7]を真空蒸着法にて20nm形成した。次に、陰極6 としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法によって20 Onm形成し、有機EL素子を作製した。

> 【0138】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、600cd/m²の 赤色発光が得られた。

> 【0139】(実施例12)発光層4として、化合物 (10) と化合物(19) を1:20の重量比で共蒸着 して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、 有機EL素子を作製した。

【0140】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、700cd/m²の 赤色発光が得られた。

【0141】(実施例13)発光層4として、化合物 (11)と化合物(22)を1:20の重量比で共蒸着 して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、 有機EL素子を作製した。

【0142】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、600cd/m²の 赤色発光が得られた。

【0143】(実施例14)発光層4として、化合物 (12)と化合物(24)を1:20の重量比で共蒸着 して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、 有機EL素子を作製した。

【0144】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、800cd/m²の 赤色発光が得られた。

【0145】(実施例15)発光層4として、化合物 (12) と化合物(26)を1:20の重量比で共蒸着 して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、 有機EL素子を作製した。

【0146】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 50

39 直流電圧を10 V 印加したところ、750 c d / m $^2$  の 赤色発光が得られた。

【0147】(実施例16)発光層4として、化合物(12)と化合物(27)を1:20の重量比で共蒸着て作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0148】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧510V印加したところ、860 c d  $m^2$  の 赤色発光が得られた。

【0149】(実施例17)発光層4として、化合物(13)と化合物(28)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0150】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、780 c d / m $^2$  の 赤色発光が得られた。

【0151】(実施例18)発光層4として、化合物(16)と化合物(24)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0152】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧510 いかしたところ、960 c d 60 m か 赤色発光が得られた。

【0153】(実施例19)発光層4として、化合物(16)と化合物(26)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0154】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1160 c d/ m $^2$ の赤色発光が得られた。

【0155】(実施例20)発光層4として、化合物(16)と化合物(28)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0156】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1100 c d/ $m^2$ の赤色発光が得られた。

【0157】(実施例21)発光層4として、化合物(16)と化合物(29)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0158】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1200cd/m² の赤色発光が得られた。

【0159】(実施例22)発光層4として、化合物(16)と化合物(33)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機E L素子を作製した。

【 0 1 6 0 】 この有機E L 素子の陽極 2 と陰極 6 の間に 直流電圧を 1 0 V 印加したところ、 1 3 0 0 c d / m<sup>2</sup> の赤色発光が得られた。

【0161】(実施例23)発光層4として、化合物(16)と化合物(35)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0162】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10 V印加したところ、1150 c d / m $^2$  の赤色発光が得られた。

【0163】(実施例24)発光層4として、化合物 10 (16)と化合物(37)を1:20の重量比で共蒸着 して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、 有機EL素子を作製した。

【0164】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1400 c d / m<sup>2</sup> の赤色発光が得られた。

【0165】(実施例25)発光層4として、化合物(16)と化合物(40)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

20 【0166】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1200cd/m<sup>2</sup> の赤色発光が得られた。

【0167】(実施例26)発光層4として、化合物(16)と化合物(43)を1:20の重量比で共蒸着して作製する以外は、実施例11と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0168】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧e10V印加したところ、1400 c d m2 の赤色発光が得られた。

30 【0169】(実施例27)正孔輸送層3としてN, N'ージフェニルーNーNービス(1ーナフチル)ー1,1'ービフェニル)ー4,4'ージアミン(化合物 [III])を、電子輸送層5としてビス{2ー(4ーセーブチルフェニル)ー1,3,4ーオキサジアゾール}ーmーフェニレン(化合物 [VIII])を用いる以外は、実施例19と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した

【 0 1 7 0 】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1200cd/m<sup>2</sup> 40 の赤色発光が得られた。

【0171】(実施例28)正孔輸送層3としてスターバースト型分子(化合物[IV])を、電子輸送層5としてトリアゾール誘導体[09]を用いる以外は、実施例19と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0172】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1500cd/m² の赤色発光が得られた。

【0173】(実施例29)正孔輸送層3としてスター バースト型分子(化合物[V])を、電子輸送層5とし 50 てトリアゾール誘導体(化合物[X])を用いる以外

は、実施例19と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0174】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1600cd/m² の赤色発光が得られた。

【0175】(実施例30)実施例30に係る有機EL 素子の断面構造を図3に示す。本実施例に係る有機EL 素子は、ガラス基板1と、ガラス基板1上に形成された 陽極2及び陰極6と、陽極2と陰極6との間に挟み込ま れた発光層4及び電子輸送層5とからなる。以下、実施 10 L素子を作製した。 例30に係る有機薄膜EL素子の作製手順について説明 する。先ず、ガラス基板1上にITOをスパッタリング によってシート抵抗が20Ω/□になるように製膜し、 陽極2とした。その上に発光層4としてN, N'ージフ ェニルーN-N-ビス(1-ナフチル)-(1,1'-ビフェニル)-4,4'-ジアミン(化合物[III]) と化合物(16)と化合物(26)を1:1:20の重 量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成した。次 いで、電子輸送層5としてトリアゾール誘導体[09] を真空蒸着法にて50 n m形成した。次に、陰極6とし てマグネシウムー銀合金を200nm形成し、EL素子 を作製した。

【0176】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、800cd/ $m^2$ の 赤色発光が得られた。

【0177】(実施例31)化合物(26)の代わりに 化合物(30)を用いる以外は、実施例30と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0178】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、950 c d / m $^2$  の 30 赤色発光が得られた。

【0179】(実施例32)発光層4として化合物(16)と化合物(25)を1:20の重量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成する以外は、実施例30と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0180】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧e10V印加したところ、930 c d e0 赤色発光が得られた。

【0181】(実施例33)化合物(25)の代わりに 化合物(29)を用いる以外は、実施例32と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0182】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、970 c d / m $^2$  の 赤色発光が得られた。

【0183】(実施例34)実施例34に係る有機EL素子の断面構造は実施例30(図3参照)に係る有機EL素子の断面構造と同一である。以下、実施例34に係る有機薄膜EL素子の作製手順について説明する。

【0184】ガラス基板1上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/□になるように製膜し、

42

陽極2とした。その上にN, N'ージフェニルーNーNービス(1ーナフチル)ー(1, 1'ービフェニル)ー4, 4'ージアミン(化合物 [III])と化合物(8)と化合物(25)をモル比で1:1:20の割合で含有するクロロホルム溶液を用いたスピンコート法により40nmの発光層4を形成した。次に、トリアゾール誘導体(化合物 [X])を真空蒸着法により50nmの電子輸送層5を形成し、その上に陰極6としてマグネシウムー銀合金を真空蒸着法により200nm形成し、有機EL素子を作製した。

【0185】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、590 c d / m $^2$  の 赤色発光が得られた。

【0186】(実施例35)実施例35に係る有機EL 素子の断面構造を図4に示す。本実施例に係る有機EL 素子は、ガラス基板1と、ガラス基板1上に形成された 陽極2及び陰極6と、陽極2と陰極6との間に挟み込ま れた正孔輸送層3及び発光層4とからなる。以下、実施 例35に係る有機薄膜EL素子の作製手順について説明 する。先ず、ガラス基板1上にITOをスパッタリング によってシート抵抗が20Ω/□になるように製膜し、 陽極2とした。その上に正孔輸送層3としてN, N'-ジフェニルーN-N-ビス(1-ナフチル)-(1, 1' -ビフェニル) -4, 4' -ジアミン(化合物 [II I])を真空蒸着法にて50nm形成した。次に、発光 層4として化合物(16)と化合物(31)とを1:2 Oの重量比で真空共蒸着した膜を50nm形成した。次 に、陰極6としてマグネシウム-銀合金を200nm形 成し、EL素子を作製した。

【0187】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、790cd/m²の 赤色発光が得られた。

【0188】(実施例36)化合物(31)の代わりに 化合物(32)を用いる以外は、実施例35と同様の操 作を行い、有機EL素子を作製した。

【0189】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、1200 c d / m $^2$  の赤色発光が得られた。

【0190】(実施例37)化合物(31)の代わりに 40 化合物(39)を用いる以外は、実施例35と同様の操作を行い、有機EL素子を作製した。

【0191】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10 V印加したところ、1110 c d / m $^2$  の赤色発光が得られた。

【0192】(実施例38)化合物(31)の代わりに 化合物(44)を用いる以外は、実施例35と同様の操 作を行い、有機EL素子を作製した。

【0193】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、950cd/m²の 50 赤色発光が得られた。

【0194】(実施例39)発光層4として、化合物 [X]と化合物(16)と化合物(37)を2:1:2 ○の重量比で真空共蒸着した50nmの膜を作製する以 外は、実施例35と同様の操作を行い、有機EL素子を 作製した。

【0195】この有機EL素子の陽極2と陰極6の間に 直流電圧を10V印加したところ、930cd/m<sup>2</sup>の 赤色発光が得られた。

#### [0196]

【発明の効果】以上のように、本発明に係る有機EL素 10 1 基板 子は一般式(1)で示される化合物を有機薄膜の構成材 料とすることにより、従来の有機EL素子に比べて高輝 度で、色純度、使用時の安定性に優れた赤色発光が得る ことができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例1に係る有機EL素子の断面図 である。

44

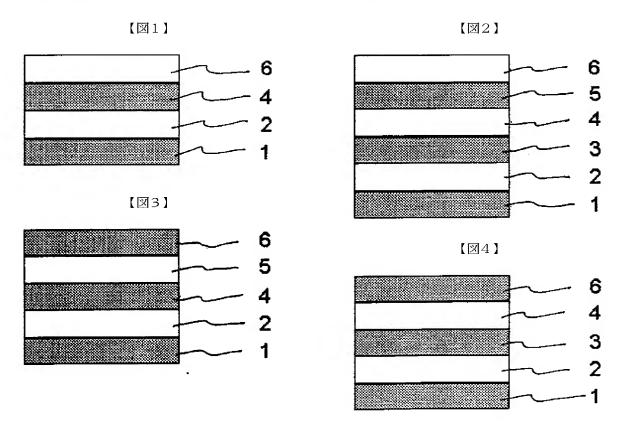
【図2】本発明の実施例11に係る有機EL素子の断面 図である。

【図3】本発明の実施例30に係る有機EL素子の断面 図である。

【図4】本発明の実施例35に係る有機EL素子の断面 図である。

#### 【符号の説明】

- - 2 陽極
  - 3 正孔輸送層
  - 4 発光層
  - 5 電子輸送層
  - 6 陰極



フロントページの続き

(72)発明者 小田 敦 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株 式会社内

**DERWENT-ACC-** 2000-002103

NO:

**DERWENT-WEEK:** 200043

COPYRIGHT 2008 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Organic electroluminescent device

developing red luminescence has high brightness, and superior colour purity and stability

INVENTOR: AZUMAGUCHI T; ODA A ; SUZUKI T ; TANAKA

Τ

PATENT-ASSIGNEE: NEC CORP[NIDE] , NIPPON ELECTRIC

CO[NIDE]

**PRIORITY-DATA:** 1997JP-337260 (December 8, 1997)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
JP 11176572 A	July 2, 1999	JA
JP 3011165 B2	February 21, 2000	JA
KR 99062892 A	July 26, 1999	KO

### APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL- DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP	N/A	1997JP-	December
11176572A		337260	8, 1997
JP	N/A	1997JP-	December
3011165B2		337260	8, 1997
KR	Previous Publ	1998KR-	December
99062892A		053697	8, 1998

### INT-CL-CURRENT:

TYPE	IPC DATE	
CIPP	H01L51/50	20060101
CIPS	C09K11/06	20060101
CIPS	Н05В33/12	20060101
CIPS	H05B33/14	20060101

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 11176572 A

### BASIC-ABSTRACT:

An organic electroluminescent device consists of: (a) a cathode; (b) an anode; and (c) at least one organic thin film layer containing a luminous layer between the cathode and the anode. At least one organic thin film layer contains a 5-cyanopyrromethene-BF2 complex with formula (1).

# Formula (1)

R1-R6 = hydrogen atoms, halogen atoms, hydroxyl

group, (un) substituted amino group, nitro group, cyano group, (un) substituted alkyl group, (un) substituted alkenyl group, (un) substituted cycloalkyl group, (un) substituted alkoxy group, (un) substituted aromatic hydrocarbon group, (un) substituted aromatic heterocylic group, (un) substituted aralkyl group, (un) substituted aryloxy group, (un) substituted alkoxy carbonyl group, or carboxyl group; R1-R6 = any two Rs may form a ring.

USE - The organic electroluminescent device develops red luminescence.

ADVANTAGE - The use of the cpd. with formula (1) as a constituent material for the organic thin film provides the organic electroluminescent device with high brightness, and superior colour purity and stability.

TITLE-TERMS: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

DEVELOP RED LUMINESCENT HIGH BRIGHT

SUPERIOR COLOUR PURE STABILISED

DERWENT-CLASS: E12 E23 L03 U11 U14 X26

**CPI-CODES:** E05-C02; L03-C04;

**EPI-CODES:** U11-A15; U14-J;

# CHEMICAL-CODES: Chemical Indexing M3 \*01\*

Fragmentation Code B605 B720 B732 B752 B809 B831 B840 C009 D010 D011 D012 D013 D014 D016 D019 D020 D029 D040 D049 E250 F010 F019 F020 F029 G001 G002 G003 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029 G030 G039 G040 G050 G100 G111 G112 G113 G221 G299 G553 G563 G599 H100 H101 H102 H103 H121 H122 H123 H321 H322 H323 H401 H402 H403 H404 H405 H421 H422 H423 H424 H521 H522 H523 H600 H601 H607 H608 H609 H621 H622 H623 H715 H721 H722 H723 J011 J012 J013 J014 J111 J112 J113 J211 J212 K0 L142 L199 L7 L721 L941 L943 M113 M115 M116 M119 M123 M125 M129 M132 M135 M139 M141 M149 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M273 M280 M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315 M316 M320 M321 M322 M323 M331 M332 M333 M340 M342 M411 M511 M512 M513 M520 M521 M522 M523 M530 M531 M532 M533 M540 M541 M542 M543 M781 Q454 Q620 R043 Ring Index Numbers 50822 Markush Compounds 0001BKK01

Chemical Indexing M3 \*02\*
Fragmentation Code B605 B720 B732
B752 B809 B831 B840 C009 D013
D016 E330 K0 L1 L142 L7 L721 M280
M320 M411 M511 M520 M530 M540

M781 Q454 Q620 R043 Markush Compounds 0001BKK02

Chemical Indexing M3 \*03\* Fragmentation Code B605 B720 B730 B731 B752 B803 B805 B831 B840 C009 D010 D019 D020 D029 D040 D049 F010 F011 F012 F013 F014 F015 F019 F020 F029 F421 F422 F423 F499 G001 G002 G003 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029 G030 G039 G040 G050 G100 G111 G112 G113 G221 G299 G553 G563 G599 H100 H101 H102 H103 H121 H122 H123 H181 H2 H211 H321 H322 H323 H381 H401 H402 H403 H404 H405 H421 H422 H423 H424 H481 H521 H522 H523 H541 H581 H600 H601 H607 H608 H609 H621 H622 H623 H683 H7 H715 H721 H722 H723 J011 J012 J013 J014 J111 J112 J113 J171 J211 J212 J271 L142 L145 L199 L941 L943 M1 M113 M115 M116 M119 M123 M125 M126 M129 M132 M135 M139 M141 M149 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M273 M280 M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315 M316 M321 M322 M323 M331 M332 M333 M340 M342 M343 M344 M353 M372 M373 M391 M411 M510 M511 M512 M513 M522 M523 M530 M531 M532 M533 M540 M541 M542 M543 M781 Q454 Q620 R043 Markush Compounds 0001BKK03

Chemical Indexing M3 \*04\*
Fragmentation Code B605 B720 B730
B731 B752 B803 B805 B831 B840
C009 D013 D601 F012 F421 H2 H211
H7 H721 K0 L1 L145 M1 M126 M132
M280 M311 M321 M344 M372 M391
M411 M511 M521 M530 M540 M781
Q454 Q620 R043 Markush Compounds
0001BKK04

## SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: 2000-000618
Non-CPI Secondary Accession Numbers: 2000-001635